

Quantification des
émissions des précurseurs
de l’ozone par
modélisation inverse

RAPPORT FINAL

Claire Granier, Gabrielle Pétron
Service d’Aéronomie, IPSL

Philippe Ciais, Philippe Bousquet
Laboratoire des Sciences
du Climat et de l’Environnement, IPSL

1. Introduction

Les modifications des distributions des différents gaz à effet de serre depuis le début du siècle ont conduit à une augmentation significative du forçage climatique. Environ 62% de l'effet de serre anthropique est dû à l'augmentation des concentrations en CO_2 , 20% est dû à l'augmentation des concentrations en méthane, 4% et 14% de ce forçage étant dus aux augmentations respectives des concentrations du protoxyde d'azote (N_2O) et des différents chlorofluorocarbures. De plus, l'augmentation de la concentration d'ozone dans la troposphère due à l'augmentation des émissions du méthane (CH_4) et des autres hydrocarbures, du monoxyde de carbone (CO) et des oxydes d'azote a conduit à un forçage supplémentaire de 10 à 15% depuis le début du XX^{ème} siècle. Ces chiffres montrent que l'ensemble des perturbations directes et indirectes liées à l'augmentation des concentrations des gaz à effet de serre direct et de l'ozone dans la troposphère doit être pris en compte dans les évaluations des changements climatiques et dans les propositions de réduction des émissions des gaz à effet de serre.

Nous nous sommes intéressés, dans le cadre de ce projet, au monoxyde de carbone (CO) et au méthane (CH_4). CO et CH_4 jouent des rôles importants dans la chimie atmosphérique pour plusieurs raisons. En présence d'oxydes d'azote et de rayonnement ultraviolet, les réactions d'oxydation de ces gaz conduisent à la formation d'ozone. La concentration moyenne globale du méthane a quasiment doublé depuis le XVIII^{ème} siècle. Dans la troposphère, CO est responsable d'environ 60% de la destruction du radical hydroxyle (OH), l'oxydant le plus efficace de l'atmosphère. L'oxydation par OH représente le principal puits pour de nombreux composés dont le CO , le CH_4 , et de nombreux autres gaz à effet de serre émis à la surface. CO a donc un rôle essentiel dans la détermination de la durée de vie du méthane et de nombreuses autres espèces. CO est émis directement à la surface de la terre en relation avec les activités industrielles, l'utilisation des combustibles fossiles, et la combustion de la biomasse. Des émissions de CO sont aussi dues à la végétation et à la photooxydation de la matière organique océanique. Environ un tiers de la concentration troposphérique de CO provient de plus de l'oxydation du méthane et des autres hydrocarbures émis soit par la végétation (isoprène, terpènes, etc...), soit lors des activités liées à l'industrialisation ou au transport. La durée de vie moyenne du CO dans la troposphère est d'environ 2 mois, et CO peut donc être transporté sur de grandes distances loin de ses zones d'émissions. Par contre, cette durée de vie est trop courte pour que ce gaz soit uniformément réparti dans la troposphère. Le méthane est émis dans les zones inondées, par les termites et à la surface de l'océan. Près de la moitié de sa source globale serait liée aux activités humaines : combustion de matière fossile, de biomasse, traitement des déchets, émanations provenant de décharges, des ruminants, des rizières. La durée de vie du méthane est d'environ 9 ans. Ce gaz est donc bien mélangé dans l'atmosphère bien que la distribution de ses sources ne soit pas uniforme à la surface du globe.

Les origines des sources et des puits de CO et CH_4 sont bien connues qualitativement. Toutefois, le bilan quantitatif de CO et de CH_4 aux échelles régionale et globale est toujours incertain. Les émissions de ces composés sont très variables dans l'espace et dans le temps, ce qui rend leur quantification à l'échelle globale difficile, et ne permet pas le développement d'inventaires précis et représentatifs.

Depuis quelques années, des mesures effectuées à la surface de la terre ou par des instruments embarqués sur avions ont permis de connaître les principales caractéristiques de CO et CH₄ dans la troposphère. Les instruments embarqués sur satellites fournissent depuis quelques années des informations sur les distributions quasi-globales de quelques espèces chimiquement actives. Le nombre croissant d'observations disponibles, ainsi que les récents développements des modèles globaux rendent désormais possible l'application des techniques de modélisation inverse visant à optimiser les bilans des espèces chimiquement actives. Notre projet avait pour but d'utiliser cet ensemble d'observations, de développer et de mettre en œuvre des méthodes de modélisation inverse qui puissent être utilisées pour optimiser les émissions du CO et du méthane.

Les modèles de chimie-transport atmosphériques sont couramment utilisés pour l'étude de l'évolution des propriétés physico-chimiques de l'atmosphère à l'échelle globale. Ces modèles utilisent des inventaires d'émissions à la surface de gaz en trace et de particules comme conditions à la limite, et les distributions des composés chimiques pris en compte dans les modèles sont calculées en résolvant les équations de continuité. La composante du modèle résolvant le transport utilise des données provenant des analyses météorologiques (ECMWF, NCEP,...) pour des années spécifiques ou des données climatologiques. Dans le cadre de la modélisation inverse, les distributions calculées pour un composé sont comparées aux observations disponibles et les différences entre les deux distributions sont utilisées pour optimiser les paramètres les plus incertains, qui sont dans cette étude les émissions de méthane et de monoxyde de carbone à la surface du globe.

La détermination précise des émissions de monoxyde de carbone et de méthane aux échelles régionales et globales pourra alors servir de référence pour l'établissement de mesures de limitation des émissions de ces deux gaz.

2. Résumé du projet

Au cours des dernières années, les modèles numériques utilisés pour simuler la composition de l'atmosphère et son évolution sous l'impact des activités humaines ont été améliorés au fur et à mesure de la progression de notre compréhension des phénomènes bio-géo-physico-chimiques régissant les distributions et de leurs paramétrisations. Parallèlement, le nombre et la qualité des mesures de la composition de la basse atmosphère ont considérablement augmenté, à la fois à partir de mesures in-situ et d'observations par télédétection.

La qualité des mesures de la composition de l'air ainsi que celle des modèles de chimie et transport atmosphériques ont stimulé la mise en œuvre de techniques inverses visant à utiliser les observations pour estimer les paramètres les plus incertains des modèles, et en particulier les émissions de gaz en trace et de particules à la surface du globe. Suivant l'exemple des développements effectués en météorologie en matière d'assimilation de données et les premières applications à la modélisation inverse du cycle du CO₂ dans la troposphère, nous avons développé des outils pour réduire les incertitudes sur les émissions à la surface de deux composés chimiques importants pour le forage radiatif du climat, le méthane et le monoxyde de carbone.

L'approche inverse choisie considère une variable d'état ou inconnue formée par une partition des émissions du gaz. Cette variable d'état est reliée au vecteur contenant les observations par un opérateur linéaire, appelé matrice d'observation. Cette matrice contient les fonctions-réponses aux différents sites d'observations pour chacun des flux de la partition d'émissions choisie. Le problème de la détermination des sources globales d'un traceur à partir d'observations de sa distribution dans l'atmosphère est un problème sous-contraint. Pour pouvoir déterminer une solution unique, la solution du problème inverse est cantonnée dans un voisinage autour d'une estimation *a priori* de la variable d'état. On parle alors d'inversion bayésienne. Des incertitudes ou erreurs sur l'estimation *a priori* et sur les observations sont fixées. L'étendue du voisinage dans lequel la solution se trouve est directement reliée à l'incertitude sur l'estimation des émissions *a priori*. Plus cet *a priori* est incertain et plus les erreurs sur les observations sont faibles, plus l'inversion pourra établir une estimation optimale «éloignée» de l'*a priori* afin de rapprocher les grandeurs simulées des observations.

Dans le cadre de ce travail, nous avons développé des méthodes de modélisation inverse que nous avons appliquées à deux types d'observations. Dans un premier temps, nous avons considéré des observations climatologiques recueillies par un ensemble de stations de surface, et nous avons optimisé les moyennes mensuelles des émissions des composés observés. Ensuite, nous avons étudié les toutes récentes distributions du monoxyde de carbone fournies par l'expérience MOPITT embarquée sur la plateforme spatiale TERRA pour développer une méthodologie adaptée aux observations par satellite, que nous avons pu valider par un ensemble d'observations indépendantes.

Les travaux que nous présentons dans ce rapport ont été effectués par des équipes appartenant à deux laboratoires de l'Institut Pierre Simon Laplace : Claire Granier et Gabrielle Pétron du Service d'Aéronomie (SA) qui se sont plus particulièrement intéressées au CO et Philippe Ciais et Philippe Bousquet du Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement (LSCE) qui ont travaillé sur la modélisation inverse du méthane. La mise en œuvre des techniques de modélisation inverse, le développement des modèles de chimie-transport atmosphériques et l'accès aux données in situ et aux données satellitaires ont été facilités et rendus possibles grâce à des collaborations avec la Division de Chimie Atmosphérique du National Center for Atmospheric Research (Boulder, USA), l'Institut d'Aéronomie Spatiale de Belgique (Bruxelles, Belgique) et le NOAA/Climate Monitoring and Diagnostic Laboratory (Boulder, USA).

3. Méthodologies expérimentales et modélisations utilisées

3.1 Inversion du CO

3.1.1 Motivation

Dans le cadre du projet, nous avons travaillé à la définition et à la mise en œuvre de méthodes d'inversion bayésiennes pour optimiser les émissions du monoxyde de carbone. Les méthodes que nous avons développées et que nous

résumons ci-dessous ont permis les toutes premières inversions à résolution mensuelle et régionale des émissions de ce composé. Dans la perspective des lancements des plateformes TERRA de la NASA et d'ENVISAT de l'ESA, portant chacun un instrument pour la mesure de la distribution de CO dans la troposphère (MOPITT et SCIAMACHY), nous avons décidé de construire un outil de modélisation inverse basé dans un premier temps sur les observations de la concentrations de CO à plusieurs stations à la surface du globe, rendues disponibles par Paul Novelli, chercheur au Climate Monitoring and Diagnostics Laboratory (CMDL) de la National Oceanographic and Atmospheric Administration (NOAA).

La méthode inverse «climatologique» est présentée dans ce paragraphe. Elle utilise les moyennes mensuelles des données du CMDL entre 1990 et 1996 pour estimer les émissions mensuelles de CO à la surface pour une année moyenne de cette période. A partir de début 2001, les premières données de l'instrument satellitaire MOPITT pour CO ont été disponibles pour tester le nouveau code d'inversion séquentielle adapté au large nombre d'observations moyennées mensuellement. Les résultats de l'inversion climatologique et certains résultats de l'inversion utilisant les données satellitaires sont présentés dans la partie 4 de ce rapport.

Depuis la fin des années 1980, les concentrations en CO sont mesurées régulièrement dans le cadre du programme de mesure géré par le CMDL. Des échantillons d'air sont recueillis toutes les semaines aux stations indiquées dans la figure 1. Les moyennes mensuelles des observations sur la période 1990-1996 à chacune de ces stations ont été utilisées pour l'inversion. Dans cette étude, nous avons utilisé le modèle tridimensionnel de chimie-transport atmosphérique IMAGES (Intermediate Model for the Annual and Global Evolution of Species) développé à l'Institut d'Aéronomie Spatiale de Belgique en collaboration avec le Service d'Aéronomie (Müller et Brasseur, *Journal of Geophysical Research*, 1995 ; Granier, Pétron, Müller, et Brasseur, *Atmospheric Environment*, 34, 5255, 2000). IMAGES est un modèle intermédiaire, qui utilise comme champs météorologiques une moyenne des analyses sur 5 ans fournies par le Centre Européen ECMWF. Le modèle a une résolution horizontale de 5x5 degrés, et 25 niveaux en altitude entre la surface et 50 hPa. Les distributions de 56 espèces chimiques sont calculées par le modèle. Les émissions à la surface des gaz en trace proviennent des inventaires fournis pour les émissions anthropiques par la base de données EDGAR (Emission Database for Global Atmospheric Research), version 2, développée par des chercheurs du RIVM (National Institute of Public Health and the Environment), Pays-Bas (<http://arch.rivm.nl/env/int/coredata/edgar/v2/index.html>) et pour les émissions naturelles par la base de données du projet GEIA (Global Emissions Inventory Activity) créée en 1990, projet de IGAC/IGBP (International Global Atmospheric Chemistry Project/ International Geosphere-Biosphere Programme) (<http://www.geiacenter.org>).

Le schéma d'inversion que nous avons développé optimise les flux d'émission résultant des activités technologiques, des feux de végétation (forêts et savanes), de la combustion de biocarburants (déchets agricoles, bois de chauffage), des processus biogéniques et des flux nets à la surface de l'océan, soit 4 types de sources continentales et une source océanique. La méthode inverse que nous avons développée permet l'optimisation des sources sur les 7 régions continentales et 5 régions océaniques représentées sur la figure 1. Notre but est donc d'optimiser 33

types de sources pour 12 mois. La distribution de chacune des sources à l'intérieur des régions reste la même que dans les émissions provenant des inventaires, que nous appellerons émissions *a priori*. Seule la source totale intégrée sur chacune des régions est optimisée. Dans un premier temps, nous avons supposé que la production chimique de CO due à l'oxydation du méthane et des autres hydrocarbures est parfaitement connue et seules les sources directes de CO ont été optimisées.

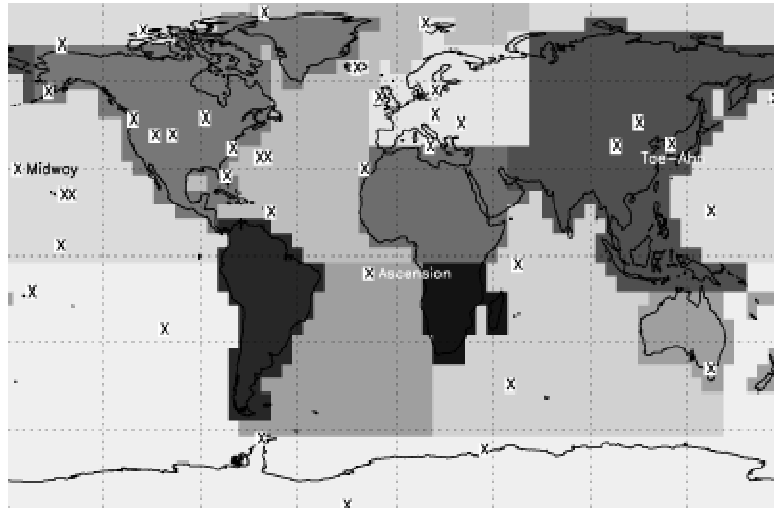
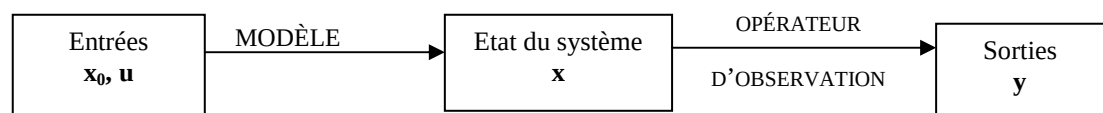


Figure 1 : Localisation des stations du réseau CMDL et des 12 régions d'émissions

3.1.2 Principe

Considérons le système dynamique suivant, représentant un modèle parfait (figure 2):



Conditions initiales
Conditions aux limites
Forçages

Figure 2: Schéma d'un modèle parfait

Le modèle direct permet de simuler l'état du système x à partir de conditions initiales x_0 et d'autres paramètres d'entrée, u , définis à chaque instant t_k . Dans tout système formalisé pour reproduire un phénomène réel, il existe une part d'incertitude ou d'erreur sur les conditions initiales, sur les autres paramètres d'entrée et sur les équations dynamiques déterminant l'évolution de l'état simulé du système. Par conséquent, à chaque instant t_k , l'état du système prédit par les équations d'évolution est entaché d'une incertitude qui se répercute en une incertitude sur les données de sortie (figure 3).

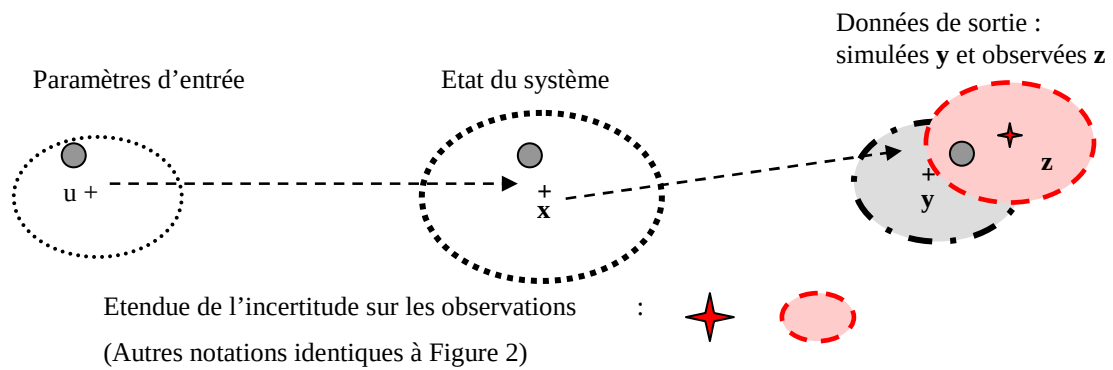


Figure 3: Schéma d'un modèle imparfait où les grandeurs réelles correspondant aux données de sortie du modèle sont mesurées par un observateur.

La modélisation inverse vise à optimiser certains paramètres du modèle, appelés paramètres ou variables de contrôle, en utilisant l'information contenue dans le modèle et l'information contenue dans les observations. L'information contenue dans le modèle est souvent qualifiée d'information *a priori*. Elle comporte les paramètres d'entrée, les équations d'évolution et l'opérateur d'observation permettant de relier les paramètres d'entrée et les données de sortie. Il s'agit de calculer la meilleure estimation possible des paramètres de contrôle en combinant toutes les pièces d'information disponibles (figure 4).

Supposons que l'erreur sur l'état observable simulé est uniquement due à une erreur sur les paramètres d'entrée u :

A partir de :

- la différence $d=(z-y)$, aussi appelée innovation, entre les observations z et les mêmes grandeurs simulées y ,
- et

- des équations reliant u à y ,

la modélisation inverse permet d'ajuster les paramètres d'entrée, u , pour minimiser la distance entre l'état analysé, $u+\Delta u$, et la réalité u_r . $u+\Delta u$ est appelé estimation *a posteriori* ou analyse.

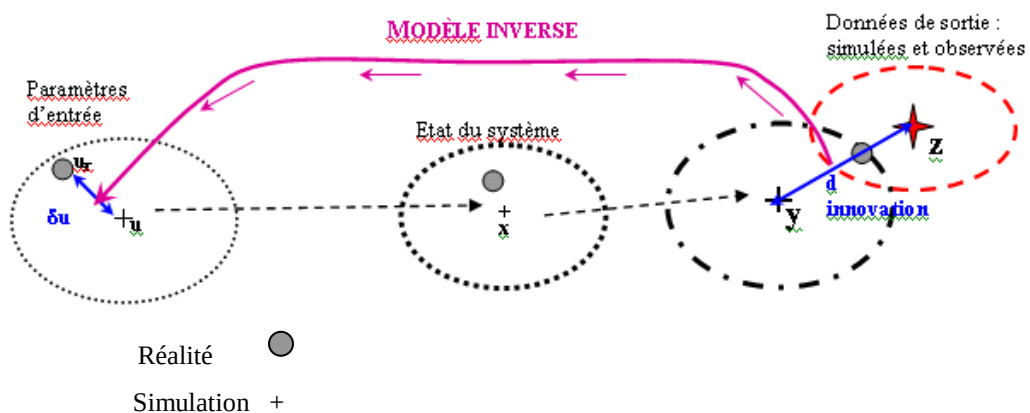
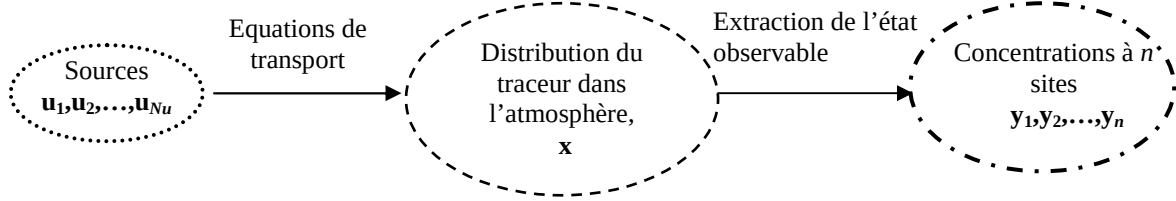


Figure 4 : Schéma de principe de la modélisation inverse dans le cas de l'ajustement de paramètres d'entrée. Les dimensions du schéma ont été modifiées par rapport aux schémas précédents par souci de clarté.

3.1.3 Mise en oeuvre

Le schéma conceptuel introduit dans la partie précédente peut être adapté à notre problème d'optimisation des sources d'un gaz en trace :



Une version linéarisée du modèle IMAGES a été développée pour calculer la relation entre le vecteur des émissions mensuelles $\mathbf{u} = \{u_i\}_{i=1, \dots, N_u} = \{\mathbf{u}_{\text{jan}}, \dots, \mathbf{u}_{\text{dec}}\}$ où $N_u = 12 \times 33$ (33 types de sources optimisées chaque mois) et le vecteur $\mathbf{y} = \{y_i\}_{i=1, \dots, N_y}$ des concentrations mensuelles moyennes en CO simulées aux stations de mesure, qui a pour dimension $N_y = 12 \times 39$ (39 sites de mesure fournissant des moyennes mensuelles des observations). Cette relation linéaire peut s'écrire sous la forme matricielle $\mathbf{y} = \mathbf{H} \cdot \mathbf{u} + \mathbf{y}_{\text{chem}}$ où $\mathbf{y}_{\text{chem}}$ est le vecteur représentant la quantité de CO produite par l'oxydation du méthane et des hydrocarbures non-méthaniques. Ce vecteur $\mathbf{y}_{\text{chem}}$ est calculé en utilisant la version complète du modèle. Les coefficients de la matrice $\mathbf{H}$ représentent l'impact, pour chaque mois, de chaque type d'émission de CO sur les moyennes mensuelles de CO à chaque station du réseau, et elle est appelée matrice d'observation. Si l'on note $\mathbf{H}_{m \rightarrow n}$ la matrice de dimension 39×33 représentant l'impact normalisé des 33 flux émis au mois m sur les observations aux 39 stations au mois n , on obtient la matrice $\mathbf{H}$ représentée sur la figure 5. L'impact des émissions a été considéré sur une durée de 6 mois, pour ce composé d'une durée de vie moyenne globale d'environ 2 mois. Cette hypothèse a permis de réduire le temps de calcul nécessaire pour obtenir la matrice $\mathbf{H}$, qui est ainsi mieux conditionnée car les valeurs très faibles sont ainsi remplacées par des valeurs nulles.

Stations/Sources		monthly 33 tagged fluxes											
		Jan	Feb	Mar	Apr	May	Jun	Jul	Aug	Sep	Oct	Nov	Dec
normalized contributions to monthly [CO] at the 39 stations ppbv/TgCO	Jan	$H_{1 \rightarrow 1}$	0	0	0	0	0	0	$H_{8 \rightarrow 1}$	$H_{9 \rightarrow 1}$	$H_{10 \rightarrow 1}$	$H_{11 \rightarrow 1}$	$H_{12 \rightarrow 1}$
	Feb	$H_{1 \rightarrow 2}$	$H_{2 \rightarrow 2}$	0	0	0	0	0	0	$H_{9 \rightarrow 2}$	$H_{10 \rightarrow 2}$	$H_{11 \rightarrow 2}$	$H_{12 \rightarrow 2}$
	Mar	$H_{1 \rightarrow 3}$	$H_{2 \rightarrow 3}$	$H_{3 \rightarrow 3}$	0	0	0	0	0	0	$H_{10 \rightarrow 3}$	$H_{11 \rightarrow 3}$	$H_{12 \rightarrow 3}$
	Apr	$H_{1 \rightarrow 4}$	$H_{2 \rightarrow 4}$	$H_{3 \rightarrow 4}$	$H_{4 \rightarrow 4}$	0	0	0	0	0	0	$H_{11 \rightarrow 4}$	$H_{12 \rightarrow 4}$
	May	$H_{1 \rightarrow 5}$	$H_{2 \rightarrow 5}$	$H_{3 \rightarrow 5}$	$H_{4 \rightarrow 5}$	$H_{5 \rightarrow 5}$	0	0	0	0	0	0	$H_{12 \rightarrow 5}$
	Jun	$H_{1 \rightarrow 6}$	$H_{2 \rightarrow 6}$	$H_{3 \rightarrow 6}$	$H_{4 \rightarrow 6}$	$H_{5 \rightarrow 6}$	$H_{6 \rightarrow 6}$	0	0	0	0	0	0
	Jul	0	$H_{2 \rightarrow 7}$	$H_{3 \rightarrow 7}$	$H_{4 \rightarrow 7}$	$H_{5 \rightarrow 7}$	$H_{6 \rightarrow 7}$	$H_{7 \rightarrow 7}$	0	0	0	0	0
	Aug	0	0	$H_{3 \rightarrow 8}$	$H_{4 \rightarrow 8}$	$H_{5 \rightarrow 8}$	$H_{6 \rightarrow 8}$	$H_{7 \rightarrow 8}$	$H_{8 \rightarrow 8}$	0	0	0	0
	Sep	0	0	0	$H_{4 \rightarrow 9}$	$H_{5 \rightarrow 9}$	$H_{6 \rightarrow 9}$	$H_{7 \rightarrow 9}$	$H_{8 \rightarrow 9}$	$H_{9 \rightarrow 9}$	0	0	0
	Oct	0	0	0	0	$H_{5 \rightarrow 10}$	$H_{6 \rightarrow 10}$	$H_{7 \rightarrow 10}$	$H_{8 \rightarrow 10}$	$H_{9 \rightarrow 10}$	$H_{10 \rightarrow 10}$	0	0
	Nov	0	0	0	0	0	$H_{6 \rightarrow 11}$	$H_{7 \rightarrow 11}$	$H_{8 \rightarrow 11}$	$H_{9 \rightarrow 11}$	$H_{10 \rightarrow 11}$	$H_{11 \rightarrow 11}$	0
	Dec	0	0	0	0	0	0	$H_{7 \rightarrow 12}$	$H_{8 \rightarrow 12}$	$H_{9 \rightarrow 12}$	$H_{10 \rightarrow 12}$	$H_{11 \rightarrow 12}$	$H_{12 \rightarrow 12}$

Figure 5: Représentation schématique de la matrice d'observation matrix $\mathbf{H}$. La sous-matrice $\mathbf{H}_{1 \rightarrow 2}$ représente par exemple l'impact normalisé des émissions de janvier sur les concentrations de CO calculées en février aux 39 stations considérées.

Nous avons développé une méthode numérique dite de "colorisation" pour calculer la matrice $\mathbf{H}$. Dans cette technique, les molécules de CO sont "colorées"

suivant leur origine. Chacune de ces molécules “colorées” est alors considérée comme un nouveau composé chimique du modèle, et la concentration de CO est la somme des concentrations de ces molécules “colorées”. Cette méthode permet de réduire de façon importante le nombre de simulations nécessaires pour le calcul de la matrice. La version linéarisée du modèle IMAGES utilise les distributions du radical OH calculées préalablement avec la version complète du modèle.

Nous avons pu justifier la troncation à 6 mois de chaque émission mensuelle en calculant les valeurs singulières des sous-matrices $\mathbf{H}_{m \rightarrow \text{juin}}$, qui sont représentées sur la figure 6. Ces valeurs singulières représentent la capacité des observations du mois de juin $\mathbf{z}_{\text{juin}}$ à contraindre les émissions des mois précédents, soit de janvier à juin. La figure 6 montre que les valeurs singulières diminuent très rapidement avec un délai croissant entre l’émission et le mois d’observation. Ceci montre que seul un nombre restreint de flux est contraint par les observations du mois de juin.

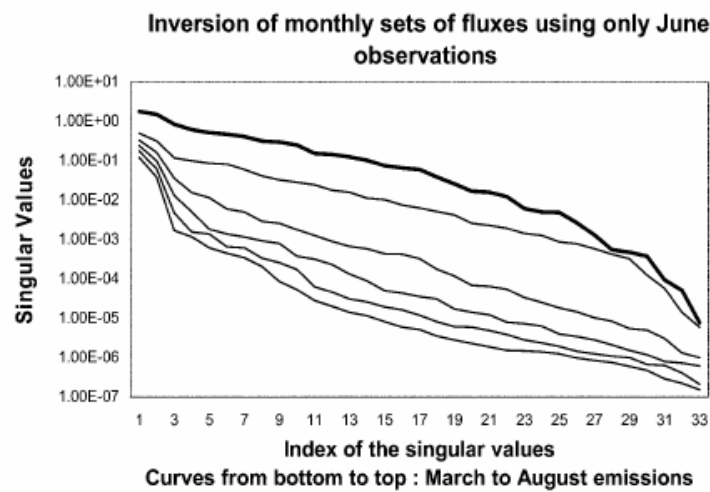


Figure 6 : Spectre des valeurs singulières des 6 sous-matrices $\mathbf{H}_{m \rightarrow \text{juin}}$, où $m = \{\text{janvier}, \dots, \text{juin}\}$. La courbe en gras donne le spectre de $\mathbf{H}_{\text{juin} \rightarrow \text{juin}}$, et les autres courbes donnent les spectres des matrices pour m de janvier à mai, de bas en haut.

Le vecteur $\mathbf{u}$ des émissions optimales est alors calculé en supposant qu’il minimise la somme pondérée de la distance quadratique entre la distribution observée $\mathbf{z}$ et calculée $\mathbf{y}$ de CO et de la distance quadratique entre le vecteur des émissions *a priori* $\mathbf{u}^b$ et ce nouveau vecteur $\mathbf{u}$. On doit donc minimiser la fonction :

$$J(\mathbf{u}) = (\mathbf{H} \cdot \mathbf{u} - (\mathbf{z} - \mathbf{y}_{\text{chem}}))^T \mathbf{R}^{-1} (\mathbf{H} \cdot \mathbf{u} - (\mathbf{z} - \mathbf{y}_{\text{chem}})) + (\mathbf{u} - \mathbf{u}^b) [\mathbf{P}^b]^{-1} (\mathbf{u} - \mathbf{u}^b)$$

où :

- $\mathbf{u}^b$ de dimension $N_u = 33 \times 12$ est le vecteur des émissions *a priori* auquel est attachée une erreur ξ^b .
- $\mathbf{z}$ est le vecteur de dimension $N_y = 39 \times 12$ des observations et l’erreur correspondante est ϵ .
- $\mathbf{H}$ est la matrice d’observation de dimension $N_y \times N_u$. Le produit $\mathbf{H} \cdot \mathbf{u}^b$ représente la contribution des émissions à la surface à la concentration de surface de CO. La concentration de CO simulée par le modèle utilisant les émissions *a priori* s’écrit donc $\mathbf{H} \cdot \mathbf{u}^b + \mathbf{y}_{\text{chem}}$.

- $\mathbf{P}^b$ est la matrice de covariance de dimension $N_u * N_u$ des erreurs sur les émissions *a priori* $\mathbf{u}^b$ et $\mathbf{R}$ est la matrice de covariance de dimension $N_y * N_y$ des erreurs sur les observations $\mathbf{z}$.

Les erreurs sur les observations ϵ et sur les émissions *a priori* ξ sont supposées avoir une moyenne nulle, ce qui est équivalent à supposer qu'il n'y a pas de biais sur les observations ou sur les émissions. Les erreurs sont supposées être indépendantes et $\mathbf{P}^b$ et $\mathbf{R}$ sont donc des matrices diagonales, dont les termes sont respectivement les variances des erreurs sur les émissions *a priori* $(\xi_i)_{i=1, N_x}$ et sur les observations $(\epsilon_j)_{j=1, N_y}$.

La valeur de $\mathbf{u}$ minimisant la fonction J est le vecteur des sources *a posteriori* $\mathbf{u}^a$. $\mathbf{u}^a$ et la matrice de covariance $\mathbf{P}^a$ des incertitudes *a posteriori* peuvent être calculés analytiquement suivant:

$$\mathbf{u}^a = (\mathbf{I} - \mathbf{KH})\mathbf{u}^b + \mathbf{K}(\mathbf{z} - \mathbf{y}_{\text{chem}})$$

$$\mathbf{P}^a = (\mathbf{I} - \mathbf{KH})\mathbf{P}^b$$

où $\mathbf{K} = \mathbf{P}^b \mathbf{H}^T [\mathbf{H} \mathbf{P}^b \mathbf{H}^T + \mathbf{R}]^{-1}$ de dimension $N_u * N_y$ est appelée matrice de gain, et $\mathbf{I}$ est la matrice identité de dimension $N_u * N_u$.

Les erreurs sur les émissions *a priori* ne sont pas quantifiées dans les inventaires disponibles. Nous avons donc supposé à partir de la comparaison de plusieurs inventaires d'émissions de CO que l'incertitude sur les émissions *a priori* est de 100% sur tous les flux d'émissions, excepté pour les émissions de CO dues aux activités industrielles mieux documentées partout sauf en Asie. L'incertitude sur les observations à la surface est estimée comme étant le maximum entre la variabilité interannuelle de la moyenne mensuelle de la concentration de CO à chaque station et 10% de la concentration moyenne de CO observée. Cette valeur de 10% surestime légèrement les erreurs dues à l'échantillonnage des observations et une partie de ces 10% prend aussi en compte le fait que notre étude suppose qu'aucune tendance à long terme sur le CO n'a existé pendant la durée des mesures, soit la période 1990-1996 pour les stations les plus anciennes. Pour les inversions effectuées dans le cadre du présent projet, nous avons supposé que les erreurs dues au modèle de chimie-transport sont nulles. Certaines erreurs du modèle seront prises en compte dans les travaux que nous entreprendrons au cours des prochains mois.

3.2 Inversion du méthane

Le taux de croissance global du méthane dans l'atmosphère est dû aux variations interannuelles des sources (naturelles et anthropogéniques) et des puits de méthane (principalement la réaction avec le radical hydroxyle OH). Au cours des 20 dernières années, ce taux de croissance a varié entre 0 ppb/an et 20 ppb/an environ (Dlugokencky, E.J., *et al.*, Continuing decline in the growth rate of the atmospheric methane burden, *Nature*, 393, 447-450, 1998). L'inversion du transport atmosphérique permet d'interpréter les mesures atmosphériques de méthane, et leurs variations dans le temps en terme de flux de méthane pour les différentes régions du monde. Le réseau de mesures actuel, supporté en majeure partie par le laboratoire CMDL de la NOAA aux Etats-Unis (<http://www.cmdl.noaa.gov/ccgg/globalview/>

ch4/), comporte plus de 70 stations inégalement réparties à la surface de la Terre. La méthodologie initialement développée pour l'estimation des sources et puits de CO₂ a été adaptée pour tenir compte du fait que le méthane est chimiquement actif dans l'atmosphère à partir de la méthodologie de Houweling et al., 1999 (Inverse modelling of methane sources and sinks using the adjoint of a global transport model, *J. Atmos. Res.*, 104, 26137-26160). Nous avons réalisé une série d'inversions sur la période 1984-2000 en faisant varier des paramètres, dont la taille des régions résolues et l'intensité et la variabilité du puits dû à la réaction avec OH. Afin d'isoler la variabilité interannuelle, les flux mensuels calculés par l'inversion sont filtrés par une moyenne glissante sur 12 mois. La valeur moyenne globale est par ailleurs retirée afin d'obtenir une anomalie de flux par région.

4. Résultats

Cette section est divisée en 3 parties : nous commencerons par présenter les résultats obtenus avec l'inversion utilisant les observations du réseau CMDL et le modèle IMAGES. Dans un deuxième temps, nous présentons les résultats que nous avons obtenus avec l'inversion utilisant les données CO de MOPITT et le modèle MOZART. Enfin, la dernière partie concerne les résultats obtenus pour l'inversion du méthane atmosphérique.

4.1 Modélisation inverse du CO utilisant les observations du réseau CMDL et le modèle IMAGES

Les valeurs annuelles moyennes des émissions de CO émis *a priori* et *a posteriori* sont présentés dans la table 1 et les moyennes mensuelles de ces émissions sont représentées sur la figure 7, pour les catégories d'émissions les plus élevées. La source directe totale de CO est estimée *a priori* à 1295.5 Tg CO/an. Cette estimation augmente fortement après l'inversion puisque les émissions à la surface *a posteriori* représentent un total de 1639.5 Tg CO/an. Cette augmentation est principalement due à une réestimation à la hausse des émissions asiatiques, alors que l'estimation des émissions sur l'Europe et l'Amérique du Nord augmente seulement de 10%. La variation saisonnière de la source asiatique est également modifiée par l'inversion.

	Emissions anthropiques		Feux de forêts et de savanes		Bois de chauffage et déchets agricoles		Sols et végétation		Total	
	a priori	a post.	a priori	a post.	a priori	a post.	a priori	a post	a priori	a post
Europe	97.9	99.8	10.1	11.2	43.8	53.4	10.8	11.4	162.6	175.8
Asie	78.4	124.1	71.8	110.1	205.1	421	39.9	53.1	395.2	708.3
Afrique	17.8	17.8	165.4	179.7	72.9	79.9	39.7	39.9	295.8	317.3
Océanie	3.6	3.6	17.6	17.0	2.2	1.6	7.6	5.5	31.0	27.7
Amérique N	82.4	83.9	54.4	59.7	37.2	46.1	18.7	21.2	192.7	210.9
Amérique S	13.5	13.4	117.6	108.3	22.7	19.8	48.4	41.9	202.2	183.4
Océans									16.4	16.5
Total	293.6	342.6	436.9	486.0	383.9	621.8	165.1	173.0	1295.9	1639.9

Table 1: Emissions régionales *a priori* et *a posteriori*.

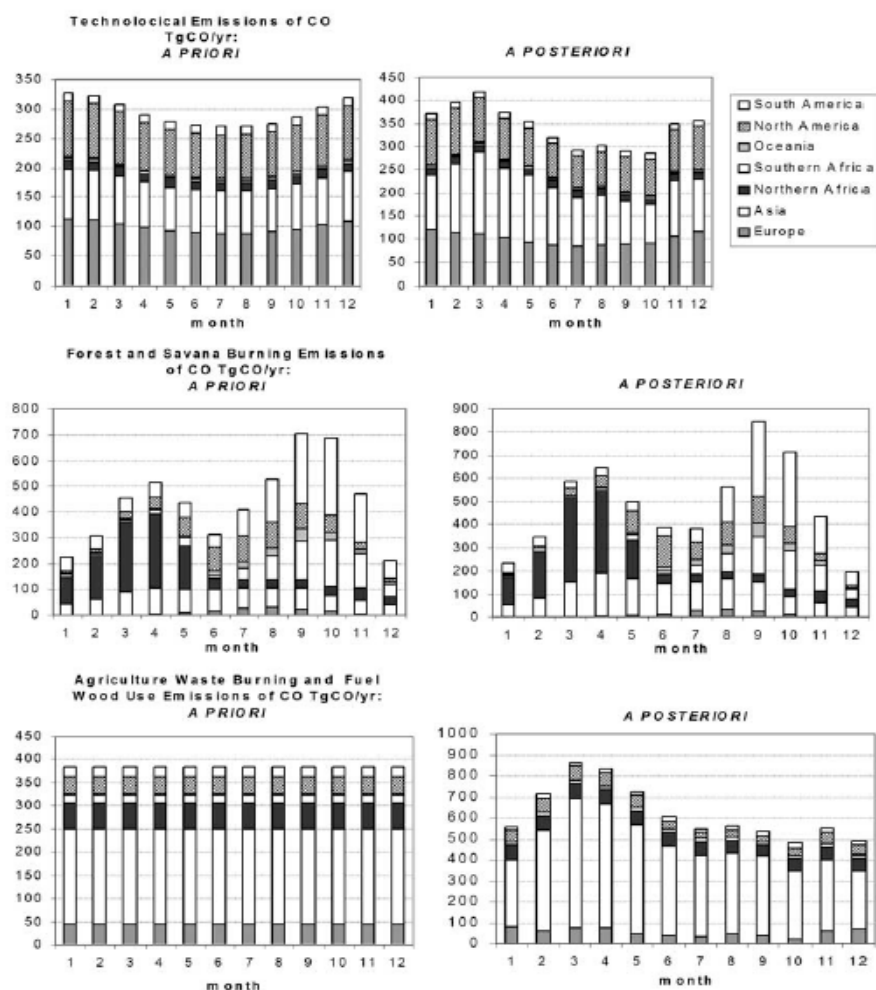


Figure 7 : Distribution saisonnière des émissions de CO dues aux activités industrielles et technologiques, dues aux feux de forêts et de savanes, et dues à la combustion des déchets agricoles et à l'utilisation du bois de chauffage. Dans chaque colonne, les différents grisés montrent les émissions pour chacune des 7 régions continentales considérées dans l'inversion. La colonne de gauche présente les émissions *a priori* et la colonne de droite montre les émissions *a posteriori*.

La figure 8 représente les concentrations observées et calculées à 6 stations du réseau CMDL. Les concentrations obtenues en utilisant les émissions *a priori* sont en général plus faibles que les concentrations observées, particulièrement au cours des mois d'hiver. En utilisant les émissions *a posteriori*, l'accord avec les observations est bien meilleur pour toutes les stations. Notons de plus que la durée de vie du méthane calculée en utilisant les émissions *a priori* est de 8.4 ans et de 8.75 ans quand on utilise les émissions *a posteriori*. Des tests de sensibilité ont aussi montré que la production chimique de CO due à l'oxydation du méthane et des autres hydrocarbures ne peut pas être optimisée avec des observations concernant seulement le CO.

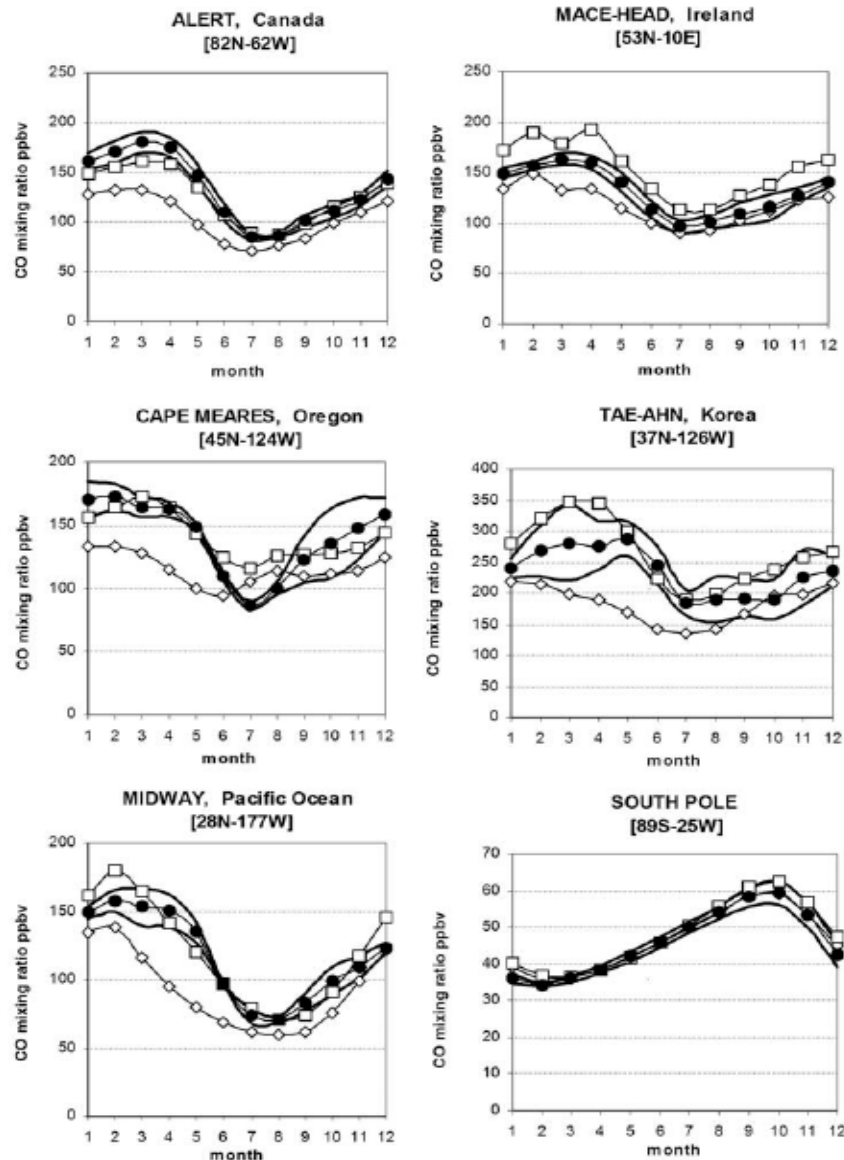


Figure 8 : CO (ppbv) observé et simulé à 6 stations du réseau CMDL. Les points noirs et traits épais correspondent respectivement à la moyenne mensuelle des concentrations et à l'écart-type correspondant. Les losanges et les carrés représentent les concentrations calculées par le modèle en utilisant respectivement les émissions *a priori* et *a posteriori*.

4.2 Optimisation des émissions en utilisant les observations satellitaires MOPITT et le modèle MOZART

Le lancement de la plateforme TERRA en décembre 1999 a permis pour la première fois des observations à l'échelle globale et quasi continûment du profil vertical de CO sur plusieurs années. Ces observations ont été mises à notre disposition dans le cadre d'une collaboration avec la Division de Chimie Atmosphérique du National Center for Atmospheric Research (NCAR, Boulder, USA). Nos travaux de modélisation inverse sont aussi effectués en collaboration avec les chercheurs de ce laboratoire. La plus grande difficulté dans cette étude a été d'adapter la méthode

présentée précédemment au nombre très important d'observations déduites des mesures de radiances par MOPITT.

Pour cette étude, nous avons utilisé le modèle appelé MOZART (Model for Ozone And Related Tracers). Ce modèle communautaire a été développé dans le cadre d'une collaboration active entre le NCAR, des universités américaines, le Max Planck Institut für Meteorologie de Hambourg, et le Service d'Aéronomie. Le modèle calcule la distribution d'environ 56 constituants chimiques entre la surface et la haute stratosphère, à une résolution horizontale et verticale définie par l'utilisateur. Nos études ont été effectuées à une résolution horizontale d'approximativement 5.6x5.6 degrés en latitude et longitude et avec 28 niveaux verticaux. Les analyses météorologiques NCEP pour les mois considérés ont été utilisées pour la représentativité du modèle de transport.

A la différence du cas précédent où peu d'observations étaient disponibles dans certaines régions du monde, nous disposons maintenant d'observations à l'échelle globale. Nous avons modifié le nombre et la répartition des régions considérées comme l'indique la table 3, soit 8 régions continentales et 2 régions océaniques. 6 types d'émissions sont ici considérées, les émissions anthropiques, les feux de forêts, les feux de savane, la combustion des déchets agricoles, l'utilisation du bois de chauffage et les émissions biogéniques. Les émissions océaniques, supposées égales à 16.5 Tg CO/an n'ont pas été optimisées.

Nos premiers travaux sur l'inversion des observations de MOPITT ont concerné le mois d'août 2000, et nous avons d'abord comparé les observations et les distributions calculées par le modèle. Les instruments satellitaires ne permettent pas de restituer directement la concentration d'une espèce à une altitude précise. En réalité, chaque profil vertical mesuré par MOPITT comprend deux parties, les concentrations mesurées pour 7 niveaux d'altitude (surface, 850, 700, 500, 300, 200 et 150 hPa), ainsi qu'une matrice donnant les noyaux. Les valeurs calculées par le modèle MOZART doivent ensuite être convoluées avec les valeurs de la matrice pour pouvoir être comparées avec les observations. La figure 9 montre une comparaison entre les observations de MOPITT en août 2000 et les valeurs convoluées de MOZART pour le même mois.

Une version du modèle MOZART ne comportant qu'un traceur est utilisée pour calculer la matrice d'observation. Cette matrice est une représentation linéaire des relations entre les émissions régionales de CO à la surface et la distribution de CO au niveau 500 hPa telle qu'elle est vue par MOPITT. Dans un premier temps, nous avons utilisé les observations à cette altitude de 500 hPa pour l'optimisation des sources. La sensibilité de MOPITT est en effet maximale pour les altitudes comprises entre 500 et 700 hPa. Les coefficients de la matrice représentent l'impact mensuel moyen sur la concentration de CO de chaque flux d'émission régional normalisé à 1 Tg CO/an. Les émissions optimisées pour chaque région sont alors celles qui minimisent la somme pondérée de l'écart quadratique entre les concentrations observées par MOPITT et les concentrations calculées correspondantes, et de l'écart quadratique entre l'ensemble d'émissions *a priori* et le nouvel ensemble d'émissions optimales.

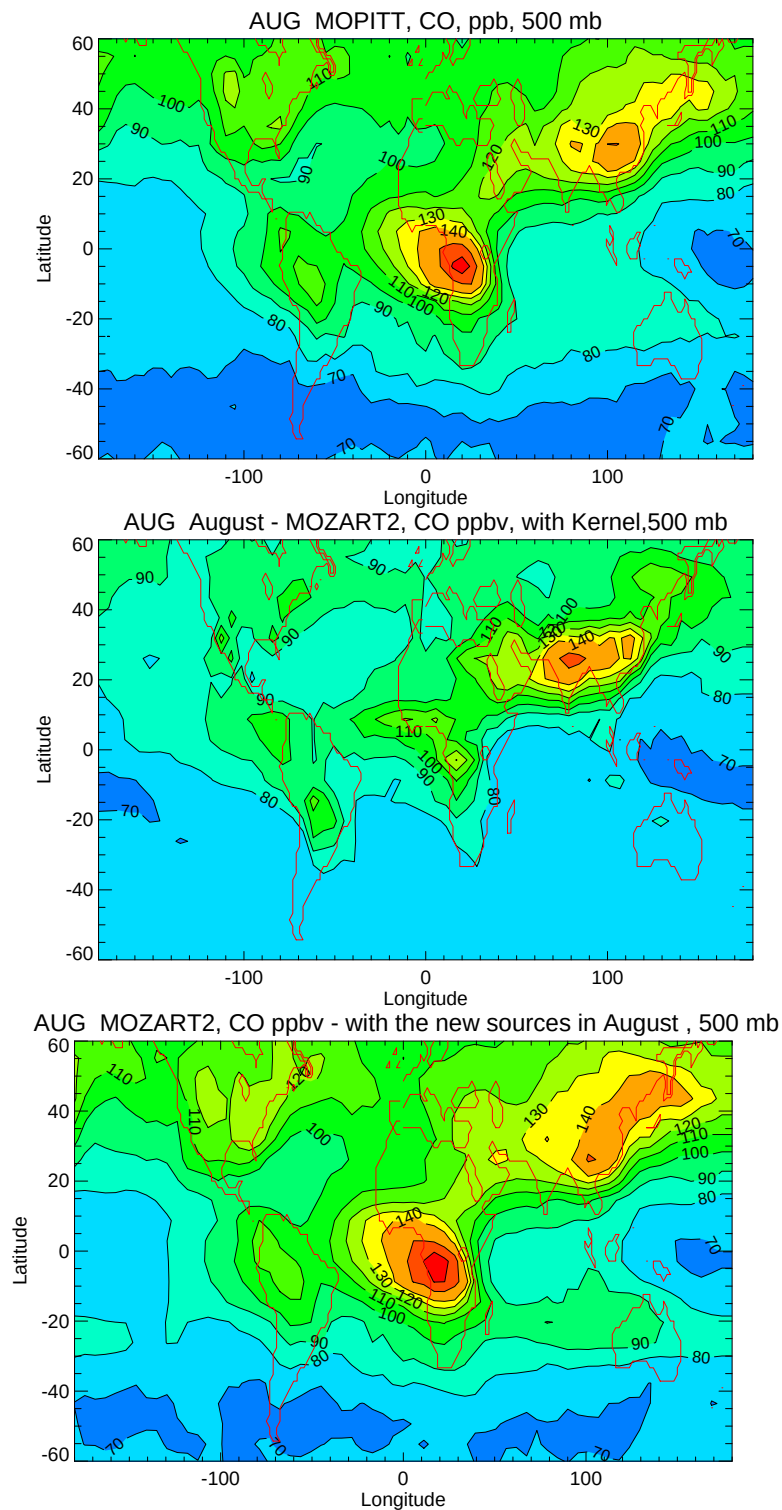


Figure 9 : Observations de la concentration de CO a 500 hPa en août 2000 (9a, haut), et valeurs calculées et convoluées obtenues par le modèle MOZART en utilisant les émissions *a priori* (9b, milieu) et *a posteriori* (9c, bas).

Le système des équations est le même que décrit précédemment mais en considérant seulement les émissions et les observations du mois d'août. Nous avons calculé le spectre des valeurs singulières de la matrice d'observation $H_{août \rightarrow août}$ (figure 10). On remarque que les valeurs singulières sont beaucoup plus élevées que dans l'inversion utilisant les observations du CMDL (figure 6), ce qui indique que dans l'inversion avec les données MOPITT le problème est beaucoup mieux contraint.

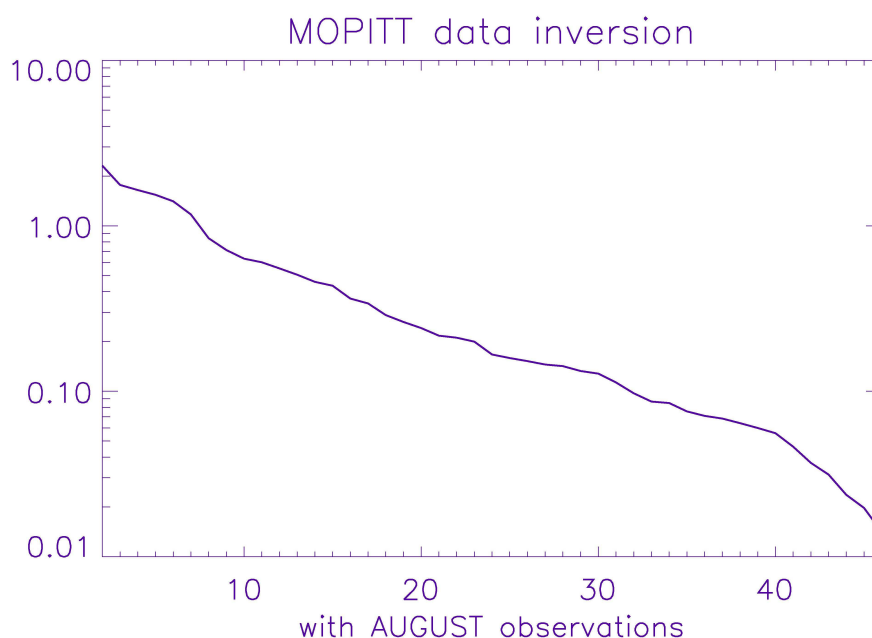


Figure 10: Spectre des valeurs singulières de la matrice d'observation

L'incertitude relative associée aux sources est de 100% sauf pour les émissions dues aux activités industrielles et technologiques (50%). L'erreur relative associée aux données MOPITT est de 100%. Les résultats de l'inversion sont présentés dans la table 2. Cette table présente le total des émissions *a priori* pour les différents types d'émission et régions, ainsi que les totaux correspondants pour les émissions *a posteriori*. Il faut noter que les totaux correspondants aux émissions *a priori* sont différents de ceux indiqués dans la table 1. La première inversion a été effectuée en utilisant les inventaires des émissions EDGAR-2, représentant les émissions de l'année 1990. L'inversion des observations satellitaires a été effectuée durant la dernière année du projet et a bénéficié d'un nouvel inventaire d'émissions anthropiques représentant les émissions des années 2000.

Comme le montre la tabl, les émissions de CO dues aux feux de forêts et de savanes en août 2000 sont fortement sous-estimées sur l'Afrique et sur-estimées en Amérique du sud dans l'inventaire d'émissions *a priori*. La source de CO due aux feux de forêts en Amérique du nord est supérieure dans l'inventaire *a posteriori*, ce qui s'explique par les feux de forêts intenses qui ont eu lieu dans l'Ouest des Etats-Unis pendant l'été 2000. A l'échelle globale, l'estimation *a priori* de la source directe de CO est de 119 Tg pour le mois d'août, et l'estimation *a posteriori* est de 144.25 Tg CO, soit une augmentation de 21%. La distribution de CO calculée avec les émissions

optimisées est représentée sur la figure 9. On constate un bien meilleur accord entre cette nouvelle distribution et les observations de MOPITT.

A priori émissions TgCO/yr	Techno- logique	Feux de forêts	Feux de savanne	Déchets agricoles	Bois de chauffage	Vegetation / Sols	TOTAL
Europe	66.7	15.1	0	38.9	2.3	15.6	138.5
Asie- Nord	13.4	48.9	0	10.6	2.7	32.2	107.8
Asie – Sud	76.1	14.8	0.4	83.4	94.8	35.8	305.5
Afrique - Nord	25.5	16.0	5.9	29.5	29.0	29.8	135.8
Afrique – Sud	5.2	36.9	83.7	5.6	15.9	12.5	159.9
Océanie	8.2	26.1	22.1	5.8	12.7	4.0	78.9
Amérique - Nord	100.3	90.6	0.3	26.2	9.5	37.9	264.7
Amérique - Sud	9.8	101.6	84.9	11.7	5.1	24.5	237.7
TOTAL	305.3	350.0	197.4	211.8	172.1	192.3	1428.9
A posteriori émissions TgCO/yr	Techno- logique	Feux de forêts	Feux de savane	Déchets agricoles	Bois de chauffage	Vegetation / Sols	TOTAL
Europe	102.1	17.3	0	50.2	2.6	18.0	190.3
Asie- Nord	17.3	93.4	0	13.6	3.4	50.2	177.9
Asie – Sud	119.5	15.8	0.9	60.4	84.7	37.3	318.7
Afrique - Nord	29.8	18.1	7.2	37.8	39.5	45.3	177.7
Afrique – Sud	5.3	46.6	113.3	6.4	20.6	18.1	210.4
Océanie	8.1	21.4	18.4	6.3	15.8	4.0	74.0
Amérique - Nord	151.2	165.3	0.8	31.9	9.6	47.1	406.0
Amérique - Sud	9.7	68.3	57.2	11.4	5.2	24.8	176.7
TOTAL	443.0	446.3	197.9	218.0	181.5	245.0	1731.7

Table 3: Emissions *a priori* et *a posteriori* de CO à l'échelle régionale en août (TgCO/an)

Nous avons ensuite étendu nos travaux à une période plus longue, d'avril 2000 à mars 2001. Les premiers résultats que nous avons obtenus pour la modélisation inverse du CO en utilisant les observations du satellite MOPITT ont montré que l'inventaire moyen que nous utilisons dans le modèle MOZART ne représente pas de façon satisfaisante les émissions dues à la combustion de la biomasse au cours de la période 2000-2001. Nous avons donc développé un nouvel inventaire des émissions dues à la combustion de la biomasse en se basant sur l'observation par le satellite ATSR (Along the Track Scanning Radiometer) des pixels de feux. En supposant que la quantité moyenne de biomasse brûlée au cours de la période d'observation de ATSR (1997-2001) est équivalente à la quantité moyenne proposée dans l'inventaire climatologique (Hao et Liu, 1994) de W.M. Hao (US Forest Service, Missoula, Montana, USA) précédemment utilisé, nous avons recalculé des cartes globales d'émissions mensuelles de CO₂ dues aux feux de biomasse pendant la période 1997-2001. La figure 11 présente la nouvelle estimation de la quantité globale moyenne mensuelle de CO₂ émise par les feux de forêts (déforestation, feux de forêts tempérées

et boréales) et de savanes, comparée à l'inventaire climatologique que nous utilisons auparavant (EDGAR).

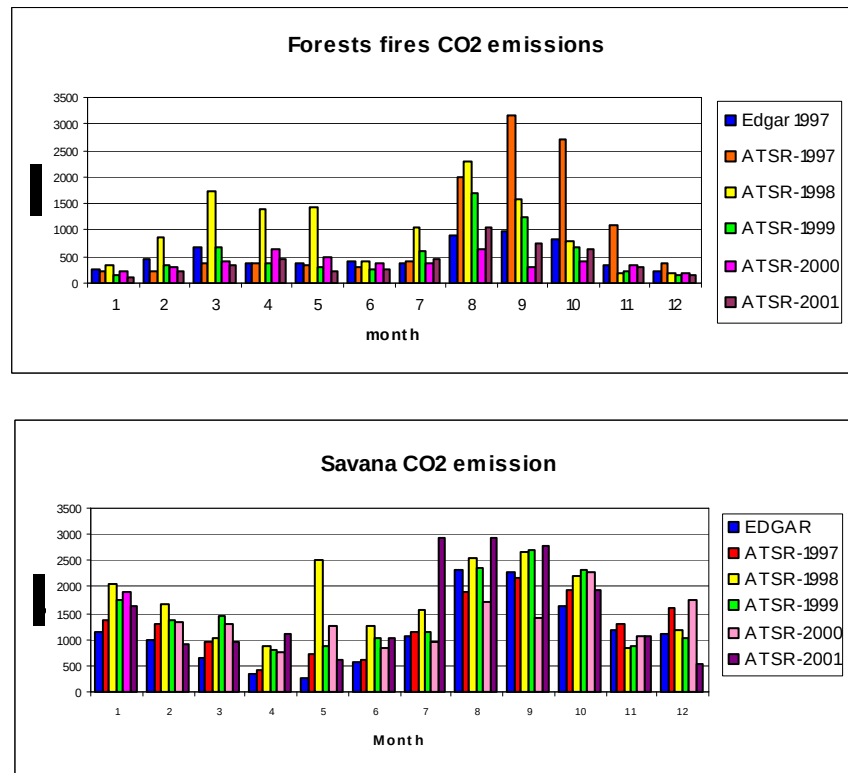


Figure 11: Emissions de CO₂ dues aux feux de forêts et de savanne basées sur les pixels de feux détectés par ATSR, et comparaison avec la base de données EDGAR.

Dans cette nouvelle étude, nous avons utilisé un ordinateur plus puissant, ce qui nous a permis d'augmenter la taille de la variable de contrôle et donc de considérer 15 régions continentales, comme indiqué dans la figure 12. Nous avons cette fois utilisé le modèle MOZART à une résolution de 2.8x2.8 degrés. Les données MOPITT validées (Emmons, L.K., et al., Validation of MOPITT CO retrievals with aircraft in situ profiles, soumis pour publication dans *J. Geophys. Res.*, 2003) à 700 hPa ont été utilisées dans cette inversion. Elles ont été regroupées à la résolution horizontale du modèle et moyennées chaque mois. La technique d'inversion mise en œuvre est une approche séquentielle (filtre de Kalman linéarisé). Une inversion est réalisée pour chaque mois d'observation : en effet, la dimension du vecteur d'observation est ici de plus de 8000 alors que dans l'inversion climatologique avec les données CMDL, cette dimension était limitée à 39 chaque mois.

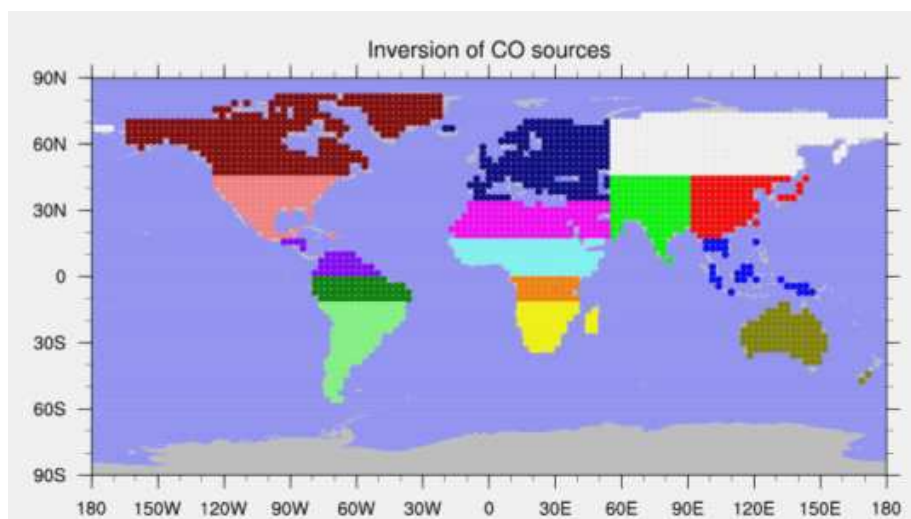


Figure 12 : Régions utilisées dans l'inversion basée sur les observations MOPITT et le modèle MOZART.

Les résultats de l'inversion sur un an sont présentées dans la figure 13. Cette figure montre le total des émissions *a priori* pour les différents types d'émission et régions, ainsi que les valeurs correspondantes pour les émissions *a posteriori*. On conclut, comme dans l'inversion précédente, à une sous-estimation importante des émissions en l'Asie, et en particulier des émissions de CO liées à l'utilisation de biocarburants.

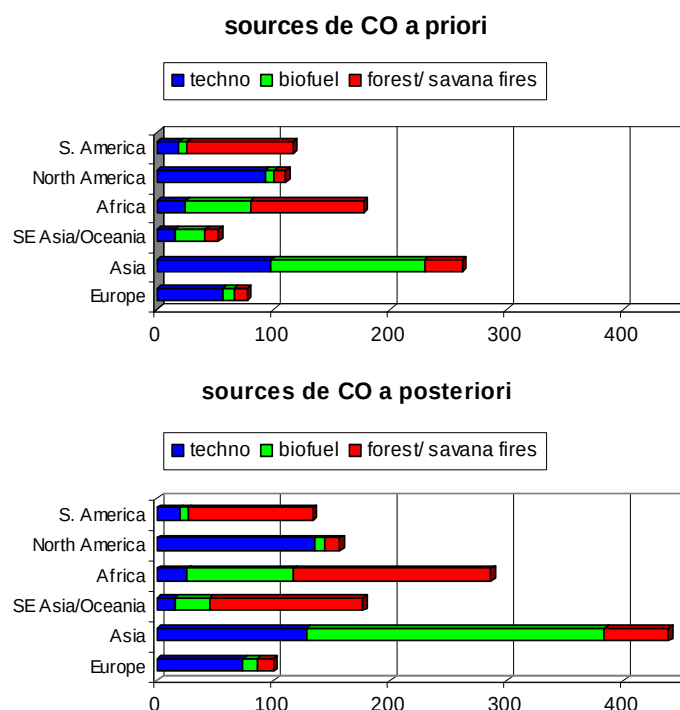


Figure 13: Bilan des émissions de CO *a priori* (haut) et *a posteriori* (bas). La source anthropique direct de CO est de 874 Tg CO/an *a priori* et de 1214 Tg CO/an *a posteriori*.

Ces nouvelles émissions ont été évaluées en les utilisant comme conditions aux limites dans le modèle MOZART. Les distributions de CO calculées à la surface ont été comparées avec les observations du réseau de mesure CMDL pour la même période. Les stations utilisées sont localisées par un cercle rouge dans la figure 14.

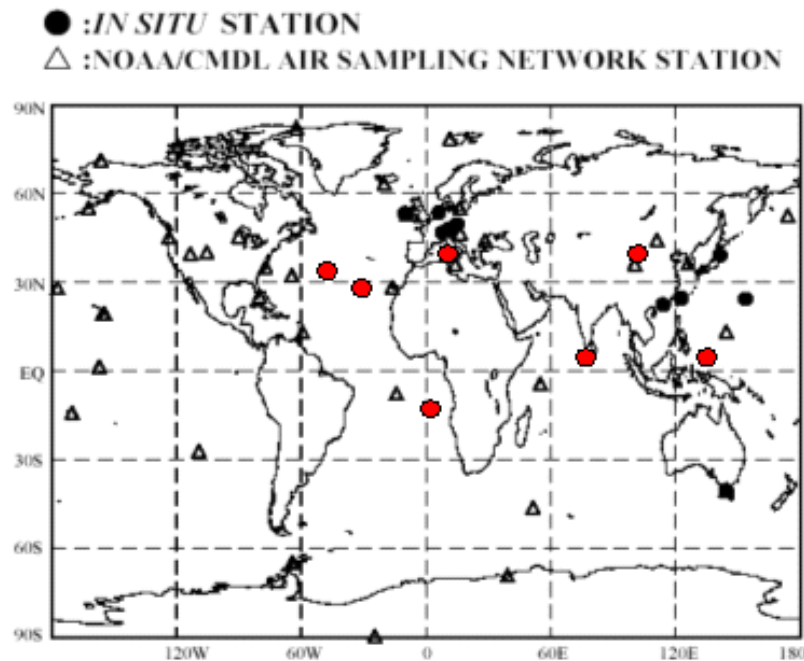


Figure 14 : Localisation des stations utilisées pour l'évaluation des résultats de la modélisation inverse.

La figure 15 représente les concentrations observées (cercles rouges) et calculées avec le modèle MOZART utilisant soit les émissions de CO *a priori* (croix grises), soit les émissions de CO *a posteriori* (croix bleues). On constate un bien meilleur accord entre les observations et les résultats de la simulation utilisant les émissions *a posteriori*. Cette évaluation des émissions en utilisant des observations non utilisées dans la procédure d'inversion démontre la validité de la méthode utilisée et des résultats obtenus.

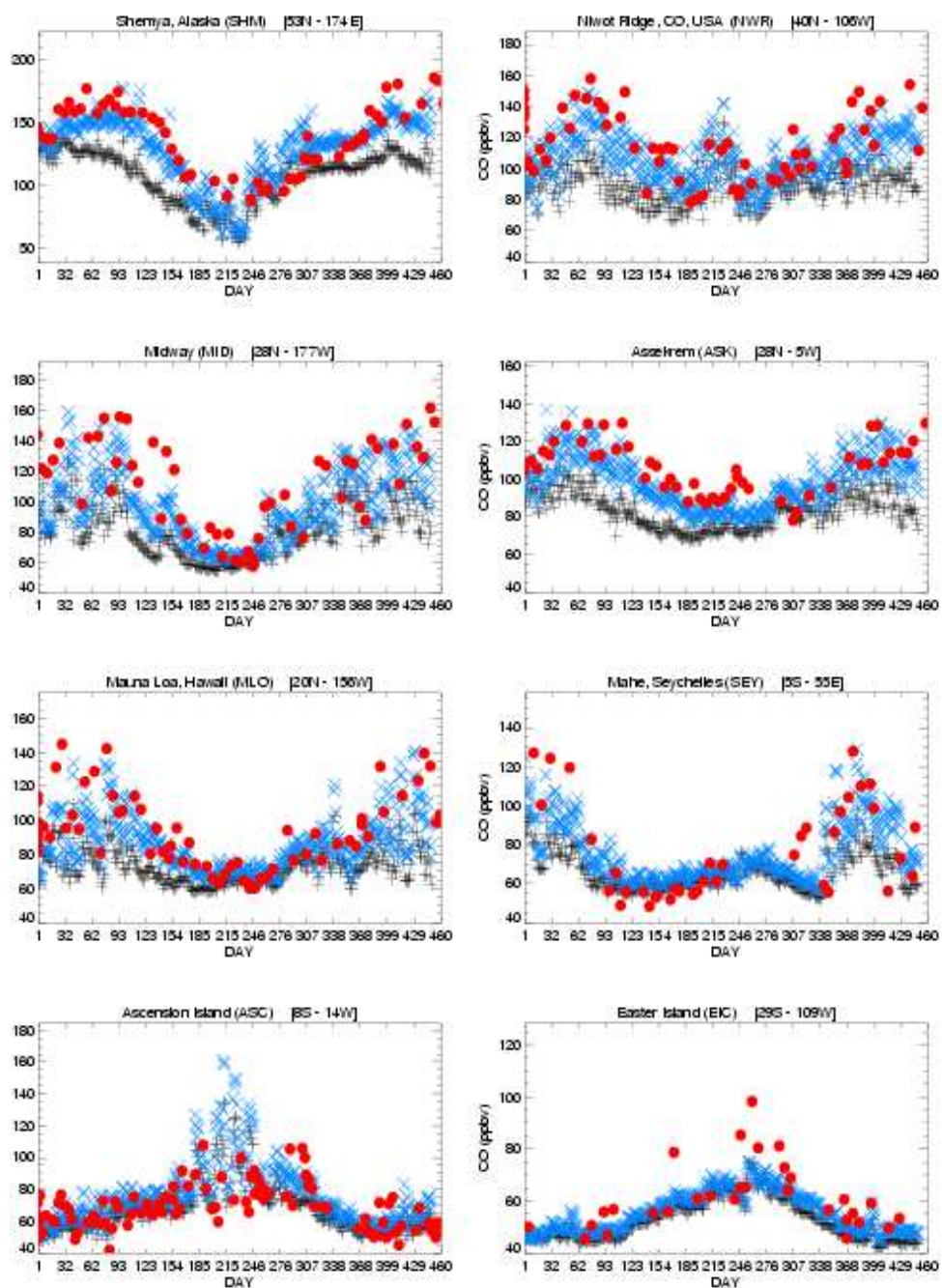


Figure 15 : Observations de CO à huit stations du réseau CMDL (cercles rouges), et concentrations simulées en utilisant les émissions *a priori* (croix grises) et *a posteriori* (croix bleues).

4.3 Modélisation inverse des émissions directes de CH₄

Les anomalies de flux de méthane calculées par l'inversion sont présentées sur la figure 16 à l'échelle globale, pour les processus naturels et anthropiques, et pour trois bandes de latitudes. La zone colorée représente l'enveloppe de toutes les inversions réalisées. Etant donnée le nombre de stations utilisées pour cette première étude (49), il n'est pour le moment pas possible de fournir des résultats fiables à des échelles spatiales plus fines. Le flux total fait apparaître deux événements majeurs : une chute brutale du flux en 1991-1992, liée à l'éruption du Mont Pinatubo et une forte anomalie positive en 1997-99, liée au fort événement El Niño et aux feux de biomasse associés. La partition des flux entre anthropiques et naturels fait apparaître des variations de même ordre de grandeur en phase et en amplitude. Cependant ce résultat est à nuancer car, pour beaucoup de régions du monde, les flux de méthane anthropiques et naturels sont co-localisés (ex : culture du riz, feux de biomasse et émissions animales en Asie). Dans ces conditions, les données atmosphériques seules ne permettent pas de séparer les composantes anthropiques et naturelles. Une façon plus pertinente de présenter les résultats dans ces conditions est donc d'agrégier les flux par région et non par processus. Sur la figure 16, l'agrégation a été faite pour 3 bandes de latitude (hémisphère nord, tropiques et hémisphère sud). Nous trouvons la plus forte variabilité des flux dans l'hémisphère nord avec une tendance négative, en particulier après 1991, qui ne se retrouve pas dans les autres bandes de latitude. Ce résultat peut être la conséquence de l'éruption du Mont Pinatubo mais aussi une conséquence de la baisse d'activité en Russie et dans les pays de l'est. L'utilisation de plus de stations de mesures devrait permettre de confirmer ou d'infirmer cette hypothèse à l'avenir.

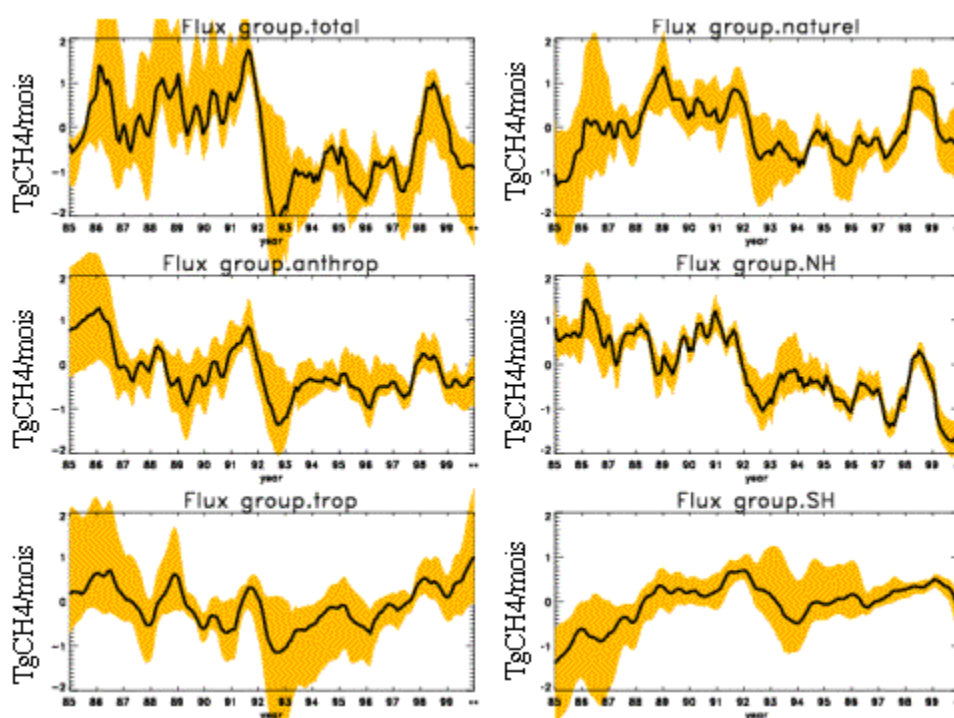


Figure 16 : Anomalie désaisonnalisée de flux de méthane pour 1984-2000. La zone colorée est l'enveloppe des inversions réalisées.

5. Conclusions et perspectives

Le projet que nous avons mené a conduit au développement de méthodes de modélisation inverse pouvant être appliquées non seulement au CO_2 , mais aussi à d'autres espèces chimiquement actives, comme le méthane, gaz à effet de serre et le monoxyde de carbone (CO). Ce gaz est essentiel pour le contrôle de la durée de vie atmosphérique du méthane, et c'est aussi un précurseur de l'ozone, lui-même gaz à effet de serre.

Le projet a aussi contribué au développement de méthodes inverses pouvant être appliquées aux observations par satellite, qui commencent tout juste à être disponibles pour un nombre restreint de composés de la troposphère. Nous avons ainsi défini un nouvel inventaire des émissions mensuelles directes de CO pour la période d'avril 2000 à mars 2001 basé sur l'inversion des observations par satellite de MOPITT. Nos méthodes pourront être appliquées aux observations globales par satellite des autres composés chimiques de l'atmosphère, dès qu'elles seront disponibles.

Les résultats que nous avons obtenus contribuent à une meilleure quantification d'émissions sur lesquelles existent de grandes incertitudes, en particulier les émissions anthropiques en Asie, les émissions dues à la combustion de la biomasse, et sur les émissions naturelles. En utilisant les émissions déterminées par modélisation inverse, nous avons pu montrer un bien meilleur accord entre les résultats des simulations effectuées au moyen d'un modèle de chimie-transport et les observations.

Nous avons montré que le problème inverse de l'optimisation des émissions de CO est faiblement non-linéaire et que la mise en œuvre du filtre de Kalman linéarisé donne des résultats très encourageants. Toutefois, si l'on veut réaliser l'inversion pour une partition de la source de CO plus détaillée, les dimensions atteintes par le problème vont devenir problématiques. Le coût du calcul de la matrice d'observation est directement proportionnel au nombre de flux optimisés. Toutefois, la partie de l'inversion la plus coûteuse reste le calcul de la matrice de covariance *a posteriori*. Or cette matrice est indispensable pour effectuer l'inversion au pas de temps suivant. Une façon de contourner le problème posé par de grandes dimensions est de se placer dans le cadre de l'assimilation variationnelle. La principale difficulté est alors de développer le code adjoint du modèle tangent linéaire dérivé du modèle direct. Le code adjoint calcule la sensibilité des observables choisis dans le système en fonction de paramètres que l'on cherche à optimiser. Le modèle adjoint permet de calculer pour un coût limité (moins de 4 fois le coût du modèle direct) le gradient de la fonction J que l'inversion cherche à minimiser. Le minimum de la fonction J est souvent déterminé par une méthode numérique itérative appelée méthode des gradients conjugués. Les paramètres qui donnent le minimum de J sont en théorie les mêmes que la solution que l'on obtiendrait en mettant en œuvre le filtre de Kalman. Nous avons commencé l'écriture du code adjoint du modèle MOZART. Ce travail s'intègre dans la poursuite d'une collaboration entre les chercheurs du Service d'Aéronomie, du Max Planck Institut für Meteorologie de Hambourg, et de la Division de Chimie Atmosphérique du NCAR. Disposer de l'adjoint du modèle MOZART va permettre de réaliser un grand nombre d'étude de sensibilité aux

différents paramètres du modèle, notamment les paramètres contrôlant la ventilation de la couche limite et la convection profonde. Nous allons aussi collaborer avec plusieurs autres laboratoires pour avoir accès à un maximum d'observations sur la distribution de plusieurs composés chimiques dans la troposphère. Nous allons étendre l'optimisation des sources de CO, du méthane et d'autres traceurs, comme les oxydes d'azote, au cadre de l'assimilation variationnelle. Nous allons aussi nous intéresser aux sources de particules fines, puisque de nombreux instruments spatiaux permettent maintenant de différencier entre plusieurs types d'aérosols. L'assimilation variationnelle s'annonce très prometteuse également pour ce qui est de la prévision de la qualité de l'air puisque l'assimilation des données permet non seulement d'ajuster les conditions aux limites mais aussi les conditions initiales.

6. Liste des publications, rapports, et communications

6.1 Publications

Granier, C., and G. Brasseur, The impact of road traffic on global tropospheric ozone, *Geophys. Res. Lett.*, 30, 2, doi:1029/2002GL015972, 2003.

L.W. Horowitz, S. Walters, D.L. Mauzerall, L.K. Emmons, P.J. Rasch, C. Granier, X. Tie, J.-F. Lamarque, M.G. Schultz, G.P. Brasseur, A global simulation of tropospheric ozone and related tracers: Description and evaluation of MOZART, version 2, submitted to *J. Geophys. Res.*, 2002.

Pétron, G., C. Granier, B. Khattatov, J.F. Lamarque, V. Yudin, J.F. Muller, et J. Gille, Inverse modeling of carbon monoxide surface emissions using NOAA-CMDL network stations, *J. Geophys. Res.*, Vol. 107, D24, doi:1029/2001JD001305, 2002.

6.2 Thèses

Pétron Gabrielle, Modélisation inverse des émissions du monoxyde de carbone, Thèse de Doctorat, Université Pierre et Marie Curie, 10 Juillet 2003.

6.3 Communications

Pétron, G., B. Khattatov, J-F Lamarque and V. Yudin, Inverse modeling of carbon monoxide sources, EU Symposium: A changing atmosphere, Turin, Italie, Septembre 2001

Khattatov B., Pétron G., Lamarque J.-F., Yudin V., Edwards D., Granier C., Bruhwiler L. Gille J. and Brasseur G., Inverse Modeling of Sources of Atmospheric Pollutants, Graduate Student Colloquium, Applied Math Department, Invited Speaker, CU Boulder, USA, Mars 2002.

Pétron G., Granier C., Khattatov B., Lamarque J.-F., Yudin V., Gille J., Inverse modeling of CO surface sources, MOPITT Science Team Meeting, Boulder, U.S.A., Mai 2002.

Pétron G., Granier C., Khattatov B., Lamarque J.-F., Yudin V., Gille J., Utilisation de techniques de modélisation inverse pour optimiser les émissions à la surface de monoxyde de carbone, Institut Pierre Simon Laplace workshop : « Assimilation et problèmes inverses », Paris, France, Juin 2002.

Pétron G., Granier C., Khattatov B., Lamarque J.-F., Yudin V., Gille J., Inverse modeling of CO emissions, International Global Atmospheric Chemistry workshop : «Atmospheric chemistry within the Earth system: from regional pollution to global climate change», Crete, Greece, Septembre 2002.

Granier C., Pétron G., Burrows J., Khattatov B., Niemeier U., Richter A., Global budget of tropospheric chemical species from space observations, COSPAR meeting, Octobre 2002.

Khattatov B., Pétron G., Lamarque J.-F., Yudin V., Edwards D., Granier C., Bruhwiler L. and Gille J., New results from inverse modeling of CO sources using MOPITT data, American Geophysical Union, San Francisco, U.S.A., Décembre 2002.

Bousquet, P., D. Hauglustaine, C. Carouge, P. Peylin, P. Cousinat and P. Ciais, Interannual methane sources inferred by inversion of atmospheric transport, EGU meeting, April 2003, Nice, France

Pétron G., Granier C., Khattatov B., Lamarque J.-F., Yudin V., Gille J., New estimates of CO emissions using the MOPITT data, poster au Symposium en l'honneur de Roger Daley, Montréal, Septembre 2003.

Bousquet, P., D. Hauglustaine, C. Carouge, P. Peylin, and P. Ciais, Interannual methane sources inferred by inversion of atmospheric transport, AGU Fall meeting, 8-12 Dec 2003, San Francisco, USA

6.4 Ecoles d'été

Gabrielle Pétron a participé à:

- l'école d'été sponsorisée par l'OTAN/ASI sur l'assimilation de données pour le système terrestre en Mai 2002 à Maratea, Italie.
- l'école de printemps organisée par le Oxford/Rutherford Appleton Laboratory Spring School sur l'assimilation de données et les techniques de modélisation inverse en Mars 2001 à Oxford, Angleterre. (Présentation d'un poster)

7. Disponibilité des données

Les observations du réseau CMDL utilisées dans cette étude sont disponibles sur le site Internet du NOAA/CMDL : <http://www.cmdl.noaa.gov/ccgg/index.html>

Les informations sur les observations de l'expérience MOPITT sont disponibles sur le site Internet suivant : <http://www.eos.ucar.edu/mopitt/> et les activités de recherche autour des données de MOPITT peuvent aussi être obtenues sur le site Internet de la Division de Chimie Atmosphérique du NCAR : http://www.acd.ucar.edu/science/asr01/ASR_MOPITT.html

Le modèle MOZART est un modèle communautaire. L'ensemble du code et les données d'entrée sont disponibles publiquement. Les informations sont disponibles soit sur le site Internet de la Division de Chimie Atmosphérique du NCAR : <http://acd.ucar.edu/models/MOZART/m2/index.html>

ou sur le site Internet du Max Planck Institute for Meteorology à Hambourg : <http://www.mpimet.mpg.de/en/extra/models/mozart/index.php>

8. Valorisation des résultats

Les résultats que nous avons obtenus sur la modélisation inverse du CO ont été publiés dans des revues internationales, et les plus récents ont été soumis pour publication très récemment. Toutes les figures et tables incluses dans ce rapport peuvent donc être mises à la disposition de la communauté sur le site internet du GICC. Les posters présentant cette étude peuvent aussi être fournis par les auteurs du rapport pour inclusion sur le site web du GICC.